

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 9 月 10 日 (10.09.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/076596 A1

- (51) 国際特許分類: C10G 11/05, B01J 29/40 (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/000426
- (22) 国際出願日: 2004 年 1 月 20 日 (20.01.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2003-016378 2003 年 1 月 24 日 (24.01.2003) JP (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1300015 東京都墨田区横綱一丁目 6 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 涌井 顕一 (WAKUI, Kenichi) [JP/JP]; 〒7450843 山口県周南市新宮町1番1号 Yamaguchi (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 ブリヂストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PROCESS OF CATALYTIC CRACKING OF HYDROCARBON

(54) 発明の名称: 炭化水素の接触分解方法

(57) Abstract: A process of the catalytic cracking of a hydrocarbon, characterized in that a hydrocarbon is catalytically cracked in the presence of a crystalline aluminosilicate zeolite catalyst carrying thereon a rare earth element in an atomic ratio of 0.4 to 20 relative to aluminum in the zeolite, using a fluidized bed, a moving bed or a reactor of a transfer line reaction type being capable of conducting continuous catalyst regeneration, at a reaction temperature of 500 to 700°C, under a reaction pressure of 50 to 500 kPa, at a steam/hydrocarbon mass ratio of 0.01 to 2 and at a catalyst/hydrocarbon mass % of 15 to 50, with a contact time of 0.1 to 10 seconds. The process allows the suppression of the formation of by-products such as an aromatic hydrocarbon and a heavy component and a selective production of light olefins such as ethylene and propylene with good stability for a long period of time.

(57) 要約: 本発明は、希土類元素の担持量がゼオライト中のアルミニウムに対して原子比で 0.4 ~ 2.0 の範囲である結晶性アルミノシリケートゼオライト触媒の存在下に、流動床、移動床、又はトランスファーライン反応形式の連続触媒再生が可能な反応器を用いて、反応温度 500 ~ 700°C、反応圧力 50 ~ 500 kPa、スチーム/炭化水素 (質量比) 0.01 ~ 2、触媒/炭化水素 (質量比) 15 ~ 50、かつ接触時間 0.1 ~ 10 秒の条件下で行うことを特徴とする炭化水素の接触分解方法である。従って、芳香族炭化水素や重質物等の副生物の生成が抑制され、長期間安定的にエチレン・プロピレン等の軽質オレフィンを選択的に製造することができる。

WO 2004/076596 A1

明 細 書

炭化水素の接触分解方法

技術分野

本発明は、炭化水素を触媒の存在下に接触分解して軽質オレフィン、主としてエチレン及びプロピレンを製造する方法に関する。

背景技術

エチレン、プロピレン等の軽質オレフィンは各種化学品の基礎原料として重要な物質である。

従来、これらの軽質オレフィンの製造方法としては、エタン、プロパン、ブタン等のガス状炭化水素あるいはナフサ等の液状炭化水素を原料とし、外熱式の管状炉内で水蒸気雰囲気下に加熱分解する方法が広く実施されている。

しかしながらこの方法では、オレフィン収率を高めるために800℃以上の高温を必要とすること、またそのために高価な装置材料を使用しなければならないという問題点を有している。

このため、触媒を用いた炭化水素の接触分解法が種々検討されてきている。

これらの中でも固体酸、特にZSM-5等のペンタシル型ゼオライトを用いた場合は、500～700℃程度の反応温度で比較的高いエチレン、プロピレン収率（それぞれの反応収率が原料炭化水素に対し約10～30質量%）が得られるため、数多くの例が報告されている。

例えば、特表平3-504737号公報、特開平6-346062号公報等では特定の酸量や酸強度を有するZSM-5型触媒による接触分解法

が開示されている。

特開平 2-1413 号公報、および特開平 2-184638 号公報では、銅、コバルト、銀等の遷移金属を含有させた ZSM-5 触媒による接触分解法が開示されている。

また、米国特許第 5,232,675 号明細書、米国特許第 5,380,690 号明細書、欧州特許第 727,404 号明細書、特開平 11-180902 号公報あるいは特開平 11-253807 号公報には希土類元素を含有する ZSM-5 型触媒による接触分解法が開示されている。

一般にこれらのゼオライト触媒を用いた反応では、炭化水素の過分解や水素移行反応で生成するカーボン（コーク）が触媒上に付着し、活性劣化を起こすという問題点があるため、流動床反応による連続再生が必要となる場合がある。

このような連続再生型反応器では、反応生成物の収率を制御するために運転因子を厳密に制御する必要がある。

すなわち、反応生成物の収率や選択率には、反応温度、反応圧力の他に、スチーム／炭化水素（質量比）や触媒／炭化水素（質量比）、あるいは WHSV や接触時間などの運転因子が大きな影響を及ぼす。

一般に、流動床型接触分解で使用されるゼオライトの固体酸としての活性が強い場合には水素移行反応が多く進行する。

この水素移行反応は、分解で生成するガソリン留分等の分岐度を高めたりオクタン価を向上させるためには有利であるが、オレフィン留分は水素移行反応によって重質化したりパラフィンになりやすいため、オレフィンを多く得ようとする場合には分解反応器中での水素移行反応をある程度抑制する必要がある。

特開平 1-110635 号公報には、希土類カチオン交換フォージャサイト等の一般的な接触分解触媒を用い、500～650℃、WHSV 0.

2 ~ 20 h⁻¹で行う接触分解方法が開示されているがこれらの触媒は水素移行活性が強いため、触媒／炭化水素（質量比）は2 ~ 12と比較的小さくする必要があり、またエチレン・プロピレンの合計収率も原料に対し約30質量%以下と低い。

特表平9-504817号公報には、リンおよび希土類元素含有の高シリカ含量ペントシル型ゼオライト触媒を用い、480 ~ 680℃、接触時間0.1 ~ 6秒で行う接触分解方法が開示されている。

この触媒は、ゼオライト中のアルミニウムに対し希土類元素を0.3以下の原子比で含有した触媒であって、水素移行反応がやや抑制されており、触媒／炭化水素（質量比）は4 ~ 20とやや大きな値とすることができるが、エチレン・プロピレン収率に大きな改善は見られていない。

一方、特開平11-180902号公報あるいは特開平11-253807号公報に開示されている触媒は従来より更に多くの希土類元素を酸化物として担持したゼオライト触媒であり、水素移行反応が著しく抑制されてエチレン・プロピレンの収率が増大することが固定床反応器を用いた検討結果で報告されている。

しかしながらこのような触媒を用いて流動床で連続的に再生を行いながらエチレン・プロピレンを製造する方法は確立されていなかった。

本発明は、上述の課題を解決し、ガス状又は液状炭化水素を原料とし、芳香族炭化水素や重質物等の副生物の生成を抑制し、長期間安定的にエチレン・プロピレン等の軽質オレフィンを選択的に製造する方法を提供することを目的とする。

発明の開示

本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意検討した結果、炭化水素を原料として軽質オレフィンを製造するに当たり、特定のゼオライト触媒の存

在下に連続反応器を使用して、特定の反応温度、反応圧力、スチーム／炭化水素（質量比）、触媒／炭化水素（質量比）、及び接触時間で接触分解反応を実施することにより上記課題を解決できることを見だし本発明を完成させた。

すなわち、本発明は、炭化水素の接触分解方法であって、希土類元素の担持量がゼオライト中のアルミニウムに対して原子比で0.4～2.0の範囲である結晶性アルミノシリケートゼオライト触媒の存在下に、流動床、移動床、又はトランスファーライン反応形式の連続触媒再生が可能な反応器を用いて、反応温度500～700℃、反応圧力50～500kPa、スチーム／炭化水素（質量比）0.01～2、触媒／炭化水素（質量比）15～50、および接触時間0.1～10秒の条件下で行うことを特徴とする炭化水素の接触分解方法に関する発明である。

発明を実施するための最良の形態

本発明で使用する炭化水素としては、常温、常圧で液状または気状の炭化水素が使用できる。

一般的には、炭素数2～30、好ましくは2～20のパラフィンまたはこれらを主成分（10質量％以上）とする炭化水素が用いられる。

このような炭化水素原料としては、例えば、エタン、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン等のパラフィン、あるいはナフサ、軽油等の炭化水素留分を挙げることができる。

また、原料成分は、飽和炭化水素に限定されるものではなく、不飽和結合を含有するものも使用できる。

本発明で使用する触媒は、希土類元素を酸化物として担持したゼオライトを主成分とする。

ゼオライトとしては高シリカのゼオライト、特にZSM-5及び／又は

ZSM-11が好ましい。

ゼオライトの $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ （モル比）は、25～800、好ましくは40～600であり、さらに好ましくは80～300である。

希土類元素としては特に制限はないが、好ましくは、ランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ガドリニウム、ジスプロシウム等を挙げることができる。

希土類元素は、それぞれ単独で使用しても、また2種以上を混合して使用してもよい。

触媒への希土類元素の修飾は、種々の塩、例えば酢酸塩、硝酸塩、ハロゲン化物、硫酸塩、炭酸塩、あるいはアルコキシド、アセチルアセトナート等を使用して、イオン交換法、含浸法、あるいは水熱合成法その他の方法で行うことができる。

本触媒での希土類元素は、ゼオライト上に担持あるいは含有されていることが重要であり、ゼオライトと希土類化合物（酸化物等）を物理的に混合しただけでは本発明の効果は得られない。

本発明の触媒において、希土類元素の含有率は、ゼオライト中のアルミニウムに対し原子比で0.4～20、好ましくは0.6～5、更に好ましくは1～3であり、希土類元素の含有率が原子比で前記0.4未満の場合は副生成物である重質コークや芳香族化合物が多くなり、一方、前記20を越える場合は触媒活性が低くなりオレフィン収率が低下する。

触媒粒子の形状や前記の触媒以外の成分については特に制限はなく、例えば、一般的な流動床型触媒に成型して使用することができる。

すなわち、粘土鉱物や無機酸化物等のバインダーと共に成型し、流動床型連続反応器等にも使用できるようにする。

その際、他のゼオライト成分やアルカリ、アルカリ土類、遷移金属、貴金属、ハロゲン、リン等を含有させることもできる。

本発明の接触分解反応は、流動床、移動床、あるいはトランスファーライン反応形式を利用した反応器、好ましくは連続触媒再生が可能な反応器で行われる。

反応温度は、 $500\sim700^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $550\sim680^{\circ}\text{C}$ 、更に好ましくは $580\sim650^{\circ}\text{C}$ の範囲である。

反応温度が前記 500°C 未満の場合は分解反応が十分に進行せず、一方、前記 700°C を越える場合は過分解反応によりオレフィンの反応収率が低下する。

反応圧力は、 $50\sim500\text{ kPa}$ 、好ましくは $100\sim300\text{ kPa}$ 、さらに好ましくは $150\sim200\text{ kPa}$ の範囲であり、反応圧力が前記 50 kPa 未満では減圧にするための装置が必要となり、一方、前記 500 kPa を越えるとオレフィン収率が低下する。

本反応においてスチームは原料の希釈やコークの除去作用によってオレフィン収率を向上させる効果があり、その導入量はスチーム／炭化水素（質量比）として $0.01\sim2$ 、好ましくは $0.1\sim1$ 、さらに好ましくは $0.2\sim0.5$ の範囲である。

スチーム／炭化水素（質量比）が前記 0.01 未満ではオレフィン収量が低下し、一方、前記 2 を越えると触媒の永久劣化を促進する。

本反応で使用する触媒は多量の希土類元素を含有させて水素移行反応を抑制しているが、触媒単位質量あたりの分解活性も通常の接触分解触媒よりも低いため、触媒／炭化水素（質量比）を大きくする必要がある。

ここでいう、触媒／炭化水素（質量比）とは、触媒循環量（ ton/h ）と原料炭化水素供給速度（ ton/h ）の比であり、その値は $15\sim50$ 、好ましくは $18\sim40$ 、さらに好ましくは $20\sim30$ の範囲である。

触媒／炭化水素（質量比）が前記 15 未満では分解反応が十分に進行せず、一方、前記 50 を越えると触媒の再生に必要な触媒再生滞留時間が長

すぎて連続再生が困難になる。

反応器内での炭化水素の触媒への接触時間は、炭化水素の原料種による相違、添加率や添加率を望みのものとするために制御することができるが、0.1～10秒、好ましくは0.5～5秒、更に好ましくは0.7～3秒の範囲で行われる。

本発明における連続触媒再生が可能な反応器とは、流動床、移動床、又はトランスファーライン反応形式で、循環する触媒の一部を抜き出して再生を行いながら反応を行うことのできる反応器を指す。

以上のような条件下に本発明の方法を実施すれば、比較的低温で炭化水素原料を効率良く分解でき、エチレン、プロピレン等の軽質オレフィンを選択的に製造することができる。

以下、実施例により本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に何ら限定されるものではない。

実施例 1

〔触媒 A の調製〕

接触分解触媒として、粉末状のプロトン型 ZSM-5 ゼオライトで、ケイ光 X 線で測定した $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (モル比) 50、表面積 $380\text{ m}^2/\text{g}$ (N_2 吸着法による測定値) のものを用い、特開平 11-180902 号公報に記載の方法に従って La を 10 質量% 含む ZSM-5 触媒 (10% La / ZSM-5) を調製した。

ゼオライト中のアルミニウムに対する La の原子比は 1.1 であった。

この 10% La / ZSM-5 をカオリナイトおよびアルミナをバインダーとして流動床型触媒に成型した。

成型触媒中のカオリナイトおよびアルミナの含有量はそれぞれ 55.8 質量%、23.0 質量% であった。

〔接触分解反応〕

触媒Aを100%スチームを用いて800℃で6時間処理して擬似平衡化させたものを触媒として用い、下記組成のナフサの接触分解反応を、連続触媒再生が可能な流動床型反応器を用いて、反応温度630℃、反応圧力140kPa、接触時間1秒、スチーム／炭化水素（質量比）0.5、および触媒／炭化水素（質量比）20の条件下で実施した。

結果を表1に示す。

〔ナフサの組成〕

C4留分： 7.2質量% C5留分： 52.3質量%

C6留分： 35.7質量% C7留分： 4.8質量%

比重： 0.65（15／4℃） 分岐／直鎖比： 0.73

芳香族炭化水素含有量： 2質量%

【0020】

実施例2

〔触媒Bの調製〕

希土類として、実施例1におけるLaの代わりにPrを10質量%含むZSM-5触媒（10%Pr／ZSM-5）を調製し、実施例1と同様にして流動床型触媒とした。

ゼオライト中のアルミニウムに対するPrの原子比は1.1であり、成型触媒中のバインダーとして使用したカオリナイトおよびアルミナの含有量はそれぞれ50.3質量%、24.5質量%であった。

〔接触分解反応〕

触媒Bを用い、実施例1と同様にしてナフサの接触分解反応を行った。

結果を表1に示す。

実施例3

実施例1に記載したと同様の触媒Aを擬似平衡化させたものをを用い、反応温度650℃、接触時間0.8秒とした以外は実施例1に記載したと同

様の反応条件下で分解反応を実施した。

結果を表 1 に示す。

表 1

実施例番号	実施例 1	実施例 2	実施例 3
触媒			
希土類元素／Al（原子比）	1. 1	1. 1	1. 1
反応条件			
反応温度（℃）	630	630	650
触媒／炭化水素（質量比）	20	20	20
スチーム／炭化水素（質量比）	0. 5	0. 5	0. 5
接触時間（秒）	1. 0	1. 0	0. 8
生成物組成（原料ナフサに対する質量％）			
エチレン	25. 8	24. 8	29. 5
プロピレン	19. 7	18. 8	14. 2
ブテン類	6. 7	7. 1	5. 2
芳香族化合物	4. 1	4. 0	6. 1
メタン	8. 0	8. 1	11. 2
エタン	8. 8	8. 5	8. 3
プロパン	8. 5	8. 0	7. 4
ブタン	2. 7	2. 5	2. 3
C5留分	10. 5	11. 2	8. 5
コーク	4. 2	4. 3	5. 1
一酸化炭素	0. 6	0. 7	0. 7
二酸化炭素	0. 5	0. 9	0. 3

比較例 1

〔触媒Cの調製〕

実施例1と同様な方法で、粉末状のプロトン型ZSM-5ゼオライト（ケイ光X線で測定した $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ （モル比）50、表面積 $380\text{ m}^2/\text{g}$ （ N_2 吸着法による測定値））に、Laを2質量%含むZSM-5触媒を調製した。

ゼオライト中のアルミニウムに対するLaの原子比は0.2であった。

この2%La/ZSM-5をカオリナイトおよびアルミナをバインダーとして流動床型触媒に成型した。

成型触媒中のカオリナイトおよびアルミナの含有量はそれぞれ55.0質量%、22.8質量%であった。

〔接触分解反応〕

触媒Cを用い、実施例1と同様にしてナフサの接触分解反応を行った。結果を表2に示す。

表2からわかるように、触媒Cを使用した場合はエチレン、プロピレン収率が低くなっている。

比較例2

実施例1で使用したと同様の触媒Aを使用し、触媒/炭化水素（質量比）を12とした以外は、実施例1に記載したと同様にナフサの接触分解反応を行った。

結果を表2に示す。

表2から、触媒/炭化水素（質量比）が本発明の15～50の範囲外である12では十分な反応成績が得られないことがわかる。

表 2

比較例番号	比較例 1	比較例 2
触媒		
希土類元素／Al（原子比）	0.2	1.1
反応条件		
反応温度（℃）	630	630
触媒／炭化水素（質量比）	20	12
スチーム／炭化水素（質量比）	0.5	0.5
接触時間（秒）	1.0	1.0
生成物組成（原料ナフサに対する質量％）		
エチレン	18.5	15.4
プロピレン	13.2	11.6
ブテン類	5.7	4.2
芳香族化合物	10.0	3.5
メタン	8.0	6.2
エタン	7.8	5.5
プロパン	8.4	5.8
ブタン	3.0	2.3
C5留分	18.2	39.7
コーク	5.5	4.0
一酸化炭素	0.4	0.2
二酸化炭素	0.3	0.2

産業上の利用可能性

本発明の炭化水素の接触分解方法によれば、ガス状あるいは液状炭化水素を原料とし、芳香族炭化水素や重質物等の副生を抑制し、長期間安定的

にエチレン、プロピレン等の軽質オレフィンを選択的に製造することが可能となる。

これによって、従来の加熱分解法と比較して反応温度を比較的低下することが可能で、経済的に有利な条件でオレフィンの製造を実施することができる。

請 求 の 範 囲

1. 炭化水素の接触分解方法であって、希土類元素の担持量がゼオライト中のアルミニウムに対して原子比で0.4～20の範囲である結晶性アルミノシリケートゼオライト触媒の存在下に、流動床、移動床、又はトランスファーライン反応形式の連続触媒再生が可能な反応器を用いて、反応温度500～700℃、反応圧力50～500kPa、スチーム／炭化水素（質量比）0.01～2、触媒／炭化水素（質量比）15～50、および接触時間0.1～10秒の反応条件下で行うことを特徴とする炭化水素の接触分解方法。

2. 希土類元素が、ランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ガドリニウム、およびジスプロシウムから選ばれた1種以上である請求項1に記載の炭化水素の接触分解方法。

3. 希土類元素の担持量が前記ゼオライト触媒中のアルミニウムに対して原子比で0.6～5の範囲であることを特徴とする請求項1に記載の炭化水素の接触分解方法。

4. ゼオライトの $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ （モル比）が、25～800であることを特徴とする請求項1に記載の炭化水素の接触分解方法。

5. スチーム／炭化水素（質量比）が、0.1～1であることを特徴とする請求項1に記載の炭化水素の接触分解方法。

6. 分解反応の接触時間が、0.5～5秒であることを特徴とする請求項

1 に記載の炭化水素の接触分解方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/000426

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C10G11/05, B01J29/40

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C10G11/00-11/18, B01J29/40

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 11-180902 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 06 July, 1999 (06.07.99), Claims; Par. Nos. [0009], [0011] to [0017] (Family: none)	1-6
A	WO 99/57087 A1 (EXXON CHEMICAL PATENTS INC.), 11 November, 1999 (11.11.99), & CA 2331609 A & EP 1076637 A1 & CN 1305445 T & JP 2002-513822 A & US 2002/0179491 A1	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 April, 2004 (12.04.04)Date of mailing of the international search report
11 May, 2004 (11.05.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C10G11/05, B01J29/40

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C10G11/00-11/18, B01J29/40

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 11-180902 A (出光石油株式会社) 1999.07.06、 特許請求の範囲、【0009】欄、【0011】～【0017】欄(ファミリーなし)	1-6
A	WO 99/57087 A1 (EXXON CHEMICAL PATENTS INC.) 1999.11.11 & CA 2331609 A & EP 1076637 A1 & CN 1305445 T & JP 2002-513822 A & US 2002/0179491 A1	1-6

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12.04.2004

国際調査報告の発送日

11.5.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渡辺 陽子

4V

9279

電話番号 03-3581-1101 内線 3483